

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
 US Department of Commerce  
 United States Patent and Trademark  
 Office, PCT  
 2011 South Clark Place Room  
 CP2/5C24  
 Arlington, VA 22202  
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
 in its capacity as elected Office

<b>Date of mailing (day/month/year)</b> 29 March 2001 (29.03.01)	
<b>International application No.</b> PCT/JP00/04144	<b>Applicant's or agent's file reference</b> CN00055
<b>International filing date (day/month/year)</b> 23 June 2000 (23.06.00)	<b>Priority date (day/month/year)</b> 28 July 1999 (28.07.99)
<b>Applicant</b> NODERA, Akio et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:  
 26 January 2001 (26.01.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:  
 \_\_\_\_\_

2. The election ☒ was  
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Antonia Muller Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	--



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION OF THE RECORDING  
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and  
Administrative Instructions, Section 422)

To:

KATAOKA, Makoto  
Idemitsu Kosan Co., Ltd.  
Intellectual Property Center  
24-4, Anesakikaigan  
Ichihara-shi  
Chiba 299-0107  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 25 juin 2001 (25.06.01)	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
Applicant's or agent's file reference CN00055	
International application No. PCT/JP00/04144	International filing date (day/month/year) 23 juin 2000 (23.06.00)

1. The following indications appeared on record concerning:		
<input type="checkbox"/> the applicant	<input type="checkbox"/> the inventor	<input checked="" type="checkbox"/> the agent
<input type="checkbox"/> the common representative		
Name and Address TOHEI, Masamichi Idemitsu Kosan Co., Ltd. 24-4, Anesakikaigan Ichihara-shi, Chiba 299-0107 Japan	State of Nationality	State of Residence
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:		
<input checked="" type="checkbox"/> the person	<input type="checkbox"/> the name	<input type="checkbox"/> the address
<input type="checkbox"/> the nationality	<input type="checkbox"/> the residence	
Name and Address KATAOKA, Makoto Idemitsu Kosan Co., Ltd. Intellectual Property Center 24-4, Anesakikaigan Ichihara-shi Chiba 299-0107 Japan	State of Nationality	State of Residence
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
3. Further observations, if necessary:		
4. A copy of this notification has been sent to:		
<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned	
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned	
<input checked="" type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:	

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer  Susumu Kubo
Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Telephone No.: (41-22) 338.83.38



# PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION CONCERNING SUBMISSION OR TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

TOHEI, Masamichi  
Idemitsu Kosan Co., Ltd.  
24-4, Anesakikaigan  
Ichihara-shi, Chiba 299-0107  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 01 November 2000 (01.11.00)	
Applicant's or agent's file reference CN00055	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
International application No. PCT/JP00/04144	International filing date (day/month/year) 23 June 2000 (23.06.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 28 July 1999 (28.07.99)
Applicant IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD. et al	

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
28 July 1999 (28.07.99)	11/213644	JP	11 Augu 2000 (11.08.00)

<p>The International Bureau of WIPO 34, chemin d s Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No. (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer</p> <p>Khemais BRAHMI</p> <p>Telephone No. (41-22) 338.83.38</p>
---	--



## PATENT COOPERATION TREATY

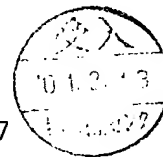
PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE  
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL  
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

TOHEI, Masamichi  
Idemitsu Kosan Co., Ltd.  
24-4, Anesakikaigan  
Ichihara-shi, Chiba 299-0107  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 01 February 2001 (01.02.01)		
Applicant's or agent's file reference CN00055		IMPORTANT NOTICE
International application No. PCT/JP00/04144	International filing date (day/month/year) 23 June 2000 (23.06.00)	Priority date (day/month/year) 28 July 1999 (28.07.99)
Applicant IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD. et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

EP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 01 February 2001 (01.02.01) under No. WO 01/07520

**REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)**

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

**REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))**

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer  J. Zahra
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38





## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04144

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> C08L 69/00, C08K 5/42, C08J 5/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> C08L 69/00, C08K 3/00-13/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000  
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y1	JP, 10-306308, A (Mitsubishi Eng. Plast. K.K.), 17 November, 1998 (17.11.98), Claims; Columns 2, 9, 18 (Family: none)	1, 3, 4, 6-9 2, 5
Y2	EP, 902060, A2 (NEC CORPORATION Tokyo), 17 March, 1999 (17.03.99), Claims, Column 28; Example & JP, 10-139964, A	2, 5

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
05 September, 2000 (05.09.00)Date of mailing of the international search report  
19 September, 2000 (19.09.00)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



PCT

## 国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
〔PCT36条及びPCT規則70〕

REC'D 15 JUN 2001

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号 CN00055	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/ IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/04144	国際出願日 (日.月.年) 23.06.00	優先日 (日.月.年) 28.07.99
国際特許分類 (IPC) Int. Cl <sup>7</sup> C08L69/00, C08K5/42, C08J5/00		
出願人 (氏名又は名称) 出光石油化学株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。
- ☒ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で 2 ページである。

3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV ☐ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☐ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 26.01.01	国際予備審査報告を作成した日 01.06.01	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 天野 宏樹	4 J 2941
電話番号 03-3581-1101 内線		3457

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (1998年7月)



## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
 PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書 第 1-23 ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 1-8 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☒ 請求の範囲 第 9 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)



## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)

請求の範囲 1-8 有  
請求の範囲 無

進歩性(IS)

請求の範囲 有  
請求の範囲 1-8 無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲 1-8 有  
請求の範囲 無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

文献1: JP, 10-306208, A (三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社), 17. 11月. 1998

文献2: EP, 902060, A2 (NEC CORPORATION), 17. 3月. 1999

## 請求の範囲1-8

請求の範囲1-8に記載の発明は、文献1又は2から進歩性を有しない。

文献1には、(a)芳香族ポリカーボネート樹脂と(b)リン系難燃剤と(c)フィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレンと(d)スルホン酸アルカリ金属塩又はスルホン酸アルカリ土類金属塩と(e)アルキル(メタ)アクリレート系重合体からなる最外殻層を有する多層構造重合体からなる組成物が記載されており、該組成物が電気・電子分野で有用な旨記載されており、該組成物が難燃性の向上を目的としている旨も記載されている。

文献2には、(A)芳香族ポリカーボネート樹脂と(B)水酸基及び/またはアルコキシ基を有するシリコン樹脂を含有する難燃性樹脂組成物が記載されている。

文献1、文献2に記載の発明は共に難燃性の向上を目的とするポリカーボネート樹脂組成物なので、文献1に記載の樹脂組成物にさらに文献2に記載の(B)成分を添加することによりさらなる難燃性の向上を目指す程度のことは当業者であれば容易に想到できると認められる。また、そのことによる格別な効果も認められない。





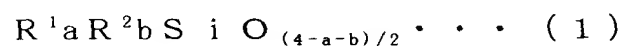
## 請 求 の 範 囲

1. (補正後) (A) ポリカーボネート樹脂 100 重量部に対して、(B) コア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体 0.2～10 重量部、(C) 有機アルカリ金属塩及び／又は有機アルカリ土類金属塩 0.02～5 重量部 (D) ポリフルオロオレフィン樹脂 0.02～3 重量部及び (E) 官能基含有シリコン化合物 0.1～10 重量部を含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

2. (補正後) (B) 成分のコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体は、アクリル系重合体がグラフトしたものである請求項 1 記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

3. (補正後) (B) 成分のコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体中のゴム状重合体の含有率が 40 重量％以上である請求項 1 又は 2 に記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

4. (補正後) (E) 成分の官能基含有シリコン化合物が、下記一般式 (1)



(式中、 $R^1$ は官能基含有基、 $R^2$ は炭素数 1～12 の炭化水素基、 $a$  及び  $b$  は、 $0 < a \leq 3$ 、 $0 \leq b < 3$ 、 $0 < a + b \leq 3$  の関係を満たす数を示す。)

で表される基本構造を有するオルガノポリシロキサンである請求項 1～3 のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

5. (補正後) (D) 成分のポリフルオロオレフィン樹脂が、フィブリル形成能を有する平均分子量 500,000 以上のポリテトラフルオロエチレンである請求項 1～4 のいずれかに記



載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

6. (補正後) (A) 成分のポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量が、15,000～25,000である請求項1～5のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

7. (補正後) 難燃性ポリカーボネート樹脂組成物が、UL 94 / 5 V A (2.5 mm) 又はUL 94 / 5 V B (2.5 mm) の規格を満足しているものである請求項1～6のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

8. (補正後) 請求項1～7のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物を使用してなる電気・電子機器のハウジングまたは部品。

9. (削除)



## 国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第 40、41 条)  
[P C T 1 8 条、P C T 規則 43、44]

出願人又は代理人 の書類記号      C N 0 0 0 5 5	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(P C T / I S A / 2 2 0 ) 及び下記 5 を参照すること。	
国際出願番号 P C T / J P 0 0 / 0 4 1 4 4	国際出願日 (日.月.年)      2 3 . 0 6 . 0 0	優先日 (日.月.年)      2 8 . 0 7 . 9 9
出願人 (氏名又は名称) 出光石油化学株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第 41 条 (P C T 1 8 条) の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で   2   ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない (第 I 欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している (第 II 欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第 III 欄に示されているように、法施行規則第 47 条 (P C T 規則 38.2(b)) の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から 1 カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第        図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。



<b>A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))</b> Int. Cl <sup>7</sup> , C08L 69/00, C08K 5/42, C08J 5/00		
<b>B. 調査を行った分野</b> 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl <sup>7</sup> , C08L 69/00, C08K 3/00-13/08, C08J 5/00		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1926-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2000年 日本国実用新案登録公報 1996-2000年 日本国登録実用新案公報 1994-2000年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
<b>C. 関連すると認められる文献</b>		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 10-306308, A (三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社) 17. 11月. 1998 (17. 11. 98) 特許	1, 3, 4, 6-9
Y1	請求の範囲, 第2欄, 第9欄, 第18欄 (ファミリーなし)	2, 5
Y2	EP, 902060, A2 (NEC CORPORATION Tokyo) 17. 3月. 1999 (17. 03. 99) Claims, 第28欄, Example & JP, 10-139964, A	2, 5
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	05. 09. 00	国際調査報告の発送日
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 油科 壮一
		4 J 2941 電話番号 03-3581-1101 内線 3493





## PATENT COOPERATION TREATY

## PCT

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference CN00055	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/04144	International filing date (day/month/year) 23 June 2000 (23.06.00)	Priority date (day/month/year) 28 July 1999 (28.07.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08L 69/00, C08K 5/42, C08J 5/00		
Applicant IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 2 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 26 January 2001 (26.01.01)	Date of completion of this report 01 June 2001 (01.06.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.



## I. Basis of the report

1. With regard to the **elements** of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
pages 1-23, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
pages 1-8, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).
3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:
- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☒ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☒ the claims, Nos. 9
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-8	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-8	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-8	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

Document 1: JP, 10-306208, A (Mitsubishi Engineering-Plastics Corp.), 17 November, 1998 (17.11.98)

Document 2: EP, 902060, A2 (NEC Corp.), 17 March, 1999 (17.03.99)

**Claims 1-8**

The subject matters of claims 1-8 do not appear to involve an inventive step in view of document 1 or 2.

Document 1 describes a composition composed of a multi-layer structure polymer having an outermost crust layer consisting of (a) an aromatic polycarbonate resin, (b) a phosphorus-based flame retarder, (c) polytetrafluoroethylene having fibril formability, (d) an alkali metal sulfonate or an alkaline earth metal sulfonate and (e) an alkyl (meth)acrylate polymer, and also describes to the effect that (1) the composition is useful in the field of electrics and electronics and (2) the object of the composition is to improve flame retardancy.

Document 2 describes a flame retardant resin composition containing (A) an aromatic polycarbonate resin and (B) a silicone resin having hydroxyl groups and/or alkoxy groups.

Since the inventions described in documents 1 and 2 respectively relate to a polycarbonate resin composition having a purpose of improving flame retardancy, a person skilled in the art could have easily conceived of trying to improve flame retardancy by merely adding the ingredient (B) described in document 2 further to the resin composition described in document 1. It cannot be considered either that this constitution has any special effect.

RECEIVED  
APR - 1 2007  
OIFE/JCWS

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001年2月1日 (01.02.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/07520 A1

- (51) 国際特許分類: C08L 69/00, C08K 5/42, C08J 5/00 (NODERA, Akio) [JP/JP]. 北山 雅博 (KITAYAMA, Masahiro) [JP/JP]; 〒299-0107 千葉県市原市姉崎海岸1番地1 Chiba (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/04144
- (22) 国際出願日: 2000年6月23日 (23.06.2000) (74) 代理人: 弁理士 東平正道 (TOHEI, Masamichi); 〒299-0107 千葉県市原市姉崎海岸24番地4 出光興産株式会社内 Chiba (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): US.
- (30) 優先権データ: 特願平11/213644 1999年7月28日 (28.07.1999) JP (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光石油化学株式会社 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒130-0015 東京都墨田区横網一丁目6番1号 Tokyo (JP). 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- (72) 発明者; および 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 野寺 明夫

(54) Title: POLYCARBONATE RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: ポリカーボネート樹脂組成物

(57) Abstract: A flame-retardant polycarbonate resin composition which comprises (A) 100 parts by weight of a polycarbonate resin, (B) 0.2 to 10 parts by weight of a rubbery graft elastomer of the core/shell type, (C) 0.02 to 5 parts by weight of an organic alkali metal salt and/or an organic alkaline earth metal salt, and (D) 0.02 to 3 parts by weight of a polyfluoroolefin resin. This polycarbonate resin composition, in which flame retardancy has been imparted to a polycarbonate resin with nonhalogenated compounds, is excellent in moldability, impact resistance, thermal stability, moist-heat resistance, and suitability for recycling while retaining excellent flame retardancy.

(57) 要約:

(A) ポリカーボネート樹脂 100重量部に対して、(B) コア・シエルタイプグラフトゴム状弾性体 0.2～10重量部、(C) 有機アルカリ金属塩及び／又は有機アルカリ土類金属塩 0.02～5重量部及び(D) ポリフルオロオレフィン樹脂 0.02～3重量部を含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物である。ポリカーボネート樹脂のノンハロゲン化合物による難燃化において、優れた難燃性を維持しながら、成形性、耐衝撃性、熱安定性、耐湿熱性及びリサイクル性に優れたポリカーボネート樹脂組成物を提供する。

WO 01/07520 A1





## 明 細 書

ポリカーボネート樹脂組成物

### 技術分野

本発明は難燃性ポリカーボネート樹脂組成物に関し、さらに詳しくは、ハロゲンを含まず、少量の添加剤の含有によって優れた難燃性を示すとともに、成形性、耐衝撃性、熱安定性、耐湿熱性及びリサイクル性に優れた難燃性ポリカーボネート樹脂組成物に関するものである。

### 背景技術

ポリカーボネート樹脂は、優れた耐衝撃特性、耐熱性、電気的特性などを有しており、OA（オフィスオートメーション）機器、情報・通信機器、家庭電化機器などの電気・電子機器、自動車分野、建築分野など様々な分野において幅広く利用されている。ポリカーボネート樹脂は、一般的に自己消火性樹脂ではあるが、OA機器、情報・通信機器、家庭電化機器などの電気・電子機器分野を中心として、高度の難燃性を要求される分野があり、各種難燃剤の添加により、その改善が図られている。

ポリカーボネート樹脂の難燃性を向上する方法として、ハロゲン化ビスフェノールA、ハロゲン化ポリカーボネートオリゴマーなどのハロゲン系難燃剤が難燃剤効率の点から酸化アンチモンなどの難燃助剤とともに用いられてきた。しかし、近年、安全性、廃棄・焼却時の環境への影響の観点から、ハロゲンを含まない難燃剤による難燃化方法が市場より求められている。そのノンハロゲン系難燃剤として、有機リン系難燃剤、特に有機リン酸エステル化合物を配合したポリカーボネート樹脂組成物は優れた難燃性を示すとともに、可塑剤としての作用もあり、多くの方法が提案されている。

ポリカーボネート樹脂をリン酸エステル化合物で難燃化するために

は、リン酸エステル化合物を比較的多量に配合する必要がある。また、ポリカーボネート樹脂は成形温度が高く、溶融粘度も高いために、成形品の薄肉化、大型化に対応するために、ますます成形温度が高くなる傾向にある。このため、リン酸エステル化合物は一般的に難燃性には寄与するものの、成形加工時の金型腐食、ガスの発生など、成形環境や成形品外観上必ずしも十分でない場合がある。また、成形品が加熱下に置かれたり、高温高湿度下に置かれた場合の、衝撃強度の低下、変色の発生などの問題点が指摘されている。さらに、近時の省資源化におけるリサイクル適性が熱安定性が不十分であることから困難であるなどの問題点を残している。

これに対して、ポリカーボネート樹脂にシリコン化合物を配合することによって、燃焼時に有害なガスを発生することなく難燃性を付与することも知られている。例えば、(1) 特開平 10-139964 号公報には特定の構造や特定分子量を有するシリコン樹脂からなる難燃剤が開示されている。

また、(2) 特開昭 51-45160 号公報、特開平 1-318069 号公報、特開平 6-306265 号公報、特開平 8-12868 号公報、特開平 8-295796 号公報、特公平 3-48947 号公報などにおいてもシリコン類を用いる難燃性ポリカーボネート樹脂が開示されている。しかしながら、前者の(1)記載のものでは、難燃性のレベルはある程度優れたものであるが耐衝撃性が十分でない場合がある。後者の(2)記載のものは、シリコン類は難燃剤としての単独使用ではなく、耐ドロッピング性の改良を目的としての、例示化合物としての使用であったり、他の難燃性添加剤としての、リン酸エステル化合物、第2族金属塩などとの併用を必須とするものである点において、前者とは異なるものである。また、難燃剤含有による成

形性、物性の低下と言う別の問題点がある。

さらに、ポリカーボネート樹脂として、ポリカーボネートーポリオルガノシロキサン共重合体含有樹脂を用い、フィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレンからなるポリカーボネート樹脂組成物からなる難燃性樹脂組成物も知られている（特開平 8-81620 号公報）。この組成物はポリオルガノシロキサンの含有率が少量である特定範囲において優れた難燃性を示す組成物である。また、特開平 8-176425 号公報には、透明性等を損なうことなく難燃性を改良するために、有機アルカリ金属塩又は有機アルカリ土類金属塩、ポリオルガノシランなどを使用する方法が開示されている。しかしながら、上記二つの方法において、難燃特性は優れたものであるが、ポリカーボネート樹脂の特徴である耐衝撃性が低下する場合がある。

また、特公平 6-70176 号公報には、耐衝撃性を維持しながら難燃性を改良するために、コア・シェル型のエラストマーを一成分として使用する方法が開示されている。しかし、熱安定性に問題があり、大型製品を成形する際、変色やシルバー等の外観不良が発生しやすいという問題がある。

本発明は、上記現状の下でなされたもので、ポリカーボネート樹脂のノンハロゲン化合物による難燃化において、優れた難燃性を維持しながら、成形性、耐衝撃性、熱安定性、耐湿熱性及びリサイクル性に優れたポリカーボネート樹脂組成物を提供することを目的とするものである。

#### 発明の開示

本発明者らは、鋭意研究を重ねた結果、ポリカーボネート樹脂に、特定のゴム弾性体、有機アルカリ金属塩もしくは有機アルカリ土類金属塩及び特定のポリフルオロオレフィン樹脂を配合することにより、

上記本発明の目的を効果的に達成しうることを見だし本発明を完成させるに至った。

すなわち、本発明の要旨は下記の通りである。

1. (A) ポリカーボネート樹脂 100 重量部に対して、(B) コア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体 0.2～10 重量部、(C) 有機アルカリ金属塩及び／又は有機アルカリ土類金属塩 0.02～5 重量部及び (D) ポリフルオロオレフィン樹脂 0.02～3 重量部を含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

2. さらに、(E) 官能基含有シリコン化合物を (A) ポリカーボネート樹脂 100 重量部に対して、0.1～10 重量部含有する上記 1 記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

3. (B) 成分のコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体は、アクリル系重合体がグラフトしたものである上記 1 又は 2 に記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

4. (B) 成分のコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体のゴム状重合体の含有率が 40 重量％以上である上記 1～3 のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

5. (E) 成分の官能基含有シリコン化合物が、下記一般式 (1)

$$R^1aR^2bSiO_{(4-a-b)/2} \cdots (1)$$

(式中、 $R^1$ は官能基含有基、 $R^2$ は炭素数 1～12 の炭化水素基、 $a$  及び  $b$  は、 $0 < a \leq 3$ 、 $0 \leq b < 3$ 、 $0 < a + b \leq 3$  の関係を満たす数を示す。)

で表される基本構造を有するオルガノポリシロキサンである上記 2～4 のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

6. (D) 成分のポリフルオロオレフィン樹脂が、フィブリル形成能を有する平均分子量 500,000 以上のポリテトラフルオロエチレ

ンである上記 1 ～ 5 のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

7. (A) 成分のポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量が、15,000 ～ 25,000 である上記 1 ～ 6 のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

8. 難燃性ポリカーボネート樹脂組成物が、UL 94 / 5 V A (2.5 mm) 又は UL 94 / 5 V B (2.5 mm) の規格を満足しているものである上記 1 ～ 7 のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

9. 上記 1 ～ 8 のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物を使用してなる電気・電子機器のハウジングまたは部品。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明について詳細に説明する。

##### (A) ポリカーボネート樹脂

本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物を構成する (A) 成分であるポリカーボネート樹脂 (PC) としては、特に制限はなく種々のものを挙げることができる。通常、二価フェノールとカーボネート前駆体との反応により製造される芳香族ポリカーボネートを用いることができる。すなわち、二価フェノールとカーボネート前駆体とを溶液法あるいは熔融法、すなわち、二価フェノールとホスゲンの反応、二価フェノールとジフェニルカーボネートなどとのエステル交換法により反応させて製造されたものを使用することができる。

二価フェノールとしては、様々なものが挙げられるが、特に 2, 2-ビス (4-ヒドロキシフェニル) プロパン [ビスフェノール A]、ビス (4-ヒドロキシフェニル) メタン、1, 1-ビス (4-ヒドロキ

シフェニル) エタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル) プロパン、4, 4'-ジヒドロキシジフェニル、ビス(4-ヒドロキシフェニル) シクロアルカン、ビス(4-ヒドロキシフェニル) オキシド、ビス(4-ヒドロキシフェニル) スルフィド、ビス(4-ヒドロキシフェニル) スルホン、ビス(4-ヒドロキシフェニル) スルホキシド、ビス(4-ヒドロキシフェニル) エーテル、ビス(4-ヒドロキシフェニル) ケトンなどが挙げられる。

特に好ましい二価フェノールとしては、ビス(ヒドロキシフェニル) アルカン系、特にビスフェノールAを主原料としたものである。また、カーボネート前駆体としては、カルボニルハライド、カルボニルエステル、またはハロホルメートなどであり、具体的にはホスゲン、二価フェノールのジハロホルメート、ジフェニルカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネートなどである。この他、二価フェノールとしては、ハイドロキノン、レゾルシン、カテコール等が挙げられる。これらの二価フェノールは、それぞれ単独で用いてもよいし、2種以上を混合して用いてもよい。

なお、ポリカーボネート樹脂は、分岐構造を有していてもよく、分岐剤としては、1, 1, 1-トリス(4-ヒドロキシフェニル) エタン、 $\alpha$ ,  $\alpha'$ ,  $\alpha''$ -トリス(4-ヒドロキシフェニル)-1, 3, 5-トリイソプロピルベンゼン、フロログリシン、トリメリット酸、イサチンビス(o-クレゾール) などがある。また、分子量の調節のためには、フェノール、p-tert-ブチルフェノール、p-tert-オクチルフェノール、p-クミルフェノールなどが用いられる。

また、本発明に用いるポリカーボネート樹脂としては、テレフタル酸などの2官能性カルボン酸、またはそのエステル形成誘導体などのエステル前駆体の存在下でポリカーボネートの重合を行うことによっ

て得られるポリエスเทอร์ポリカーボネート樹脂などの共重合体あるいは、種々のポリカーボネート樹脂の混合物を用いることもできる。

本発明に使用されるポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量は、15,000～25,000のもの、さらに、好ましくは15,000～20,000のものが好ましい。この粘度平均分子量が15,000未満では物性上劣ったものになり、25,000を超えると流動性に劣り成形性が悪い。この粘度平均分子量 ( $M_v$ ) は、ウベローデ型粘度計を用いて、20℃における塩化メチレン溶液の粘度を測定し、これより極限粘度  $[\eta]$  を求め、次式にて算出するものである。

$$[\eta] = 1.23 \times 10^{-5} M_v^{0.63}$$

#### (B) コア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体

本発明の樹脂組成物を構成する (B) 成分としてのコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体は、コア (芯) とシェル (殻) から構成される二層構造を有しており、コア部分は軟質なゴム状態であって、その表面のシェル部分は硬質な樹脂状態であり、弾性体自体は粉末状 (粒子状態) であるグラフトゴム状弾性体である。このコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体は、ポリカーボネート樹脂と熔融ブレンドした後も、その粒子状態は、大部分がもとの粒子状の形態を保っている。配合されたグラフトゴム状弾性体の大部分がもとの形態を保っていることにより、均一に分散し表層剥離を起こさない効果が得られる。

このコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体としては、種々なるものを挙げることができる。市販のものとしては、例えばハイブレン B 621 (日本ゼオン社製)、KM-330 (ローム&ハース社製)、メタブレン W 529、メタブレン S 2001、メタブレン C 223、メタブレン B 621 (三菱レイヨン社製) 等を挙げるができる。

これらの中で、例えば、アルキルアクリレートやアルキルメタクリ

レート为主体とする単量体から得られるゴム状重合体の存在下に、ビニル系単量体の一種または二種以上を重合させて得られるものを挙げる事ができる。ここで、アルキルアクリレートやアルキルメタクリレートとしては、炭素数2～10アルキル基を有するものが好適である。具体的には、例えばエチルアクリレート、ブチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、n-オクチルメタクリレート等を挙げる事ができる。これらのアルキルアクリレート類を主体とする単量体から得られるゴム状重合体としては、アルキルアクリレート類70重量%以上と、これと共重合可能な他のビニル系単量体、例えばメチルメタクリレート、アクリロニトリル、酢酸ビニル、スチレン等30重量%以下とを反応させて得られる重合体を挙げる事ができる。なお、この場合、ジビニルベンゼン、エチレンジメタクリレート、トリアリルシアヌレート、トリアリルイソシアヌレート等の多官能性単量体を架橋剤として適宜添加して反応させてもよい。

さらに、ゴム状重合体として、ポリシロキサンゴムとの混合物も使用できる。

ゴム状重合体の存在下に反応させるビニル系単量体としては、例えば、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン等の芳香族ビニル化合物、メチルアクリレート、エチルアクリレート等のアルキルアクリレート、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート等のアルキルメタクリレートなどを挙げる事ができる。これらの単量体は、一種または二種以上を組み合わせ用いてもよいし、また、他のビニル系重合体、例えばアクリロニトリル、メタクリロニトリル等のシアン化ビニル化合物や、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル等のビニルエステル化合物等と共重合させてもよい。この重合反応は、例えば塊状重合、懸濁重合、乳化重合などの各種方法によって行うことができる。特に、乳化重合



法が好適である。

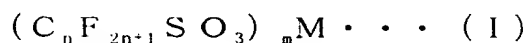
このようにして得られるコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体は、前記ゴム状重合体を20重量%以上含有していることが好ましい。さらに好ましくは40重量%以上である。このようなコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体としては、具体的には60～80重量%のn-ブチルアクリレートと、スチレン、メチルアクリレートとのグラフト共重合体などのMAS樹脂弾性体を挙げることができる。また、ポリシロキサンゴム成分が5～95重量%とポリアクリル（メタ）アクリレートゴム成分95～5重量%とが、分離できないように相互に絡み合った構造を有する、平均粒子径が0.01～1 $\mu$ m程度の複合ゴムに少なくとも一種のビニル単量体がグラフト重合されてなる複合ゴム系グラフト共重合体が特に好ましい。この共重合体は、それぞれのゴム単独でのグラフト共重合体よりも耐衝撃改良効果が高い。この複合ゴム系グラフト共重合体は、市販品としての、三菱レイヨン社製メタブレンS-2001などとして、入手できる。

この（B）成分であるコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体の含有量は、（A）ポリカーボネート樹脂100重量部に対して、0.2～10重量部、好ましくは0.5～5重量部である。ここで、グラフトゴム状弾性体の含有量少なすぎると、耐衝撃性の改良効果が低く、多すぎると難燃性、熱安定性、耐湿熱性が低くなる場合がある。なお、ここでコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体に代えて、他のグラフト共重合体を用いた場合には、耐衝撃強度の改良は見られる場合もあるが、本発明の最終目的である難燃性のレベルを維持することが困難である場合がある。

（C）有機アルカリ金属塩及び／又は有機アルカリ土類金属塩  
本発明の樹脂組成物においては、（C）成分として有機アルカリ金属

塩及び／又は有機アルカリ土類金属塩が用いられる。この有機アルカリ金属塩やアルカリ土類金属塩としては、各種のものがあるが、少なくとも一つの炭素原子を有する有機酸又は有機酸エステルのアルカリ金属塩やアルカリ土類金属塩である。ここで、有機酸又は有機酸エステルは、有機スルホン酸、有機カルボン酸などである。一方、アルカリ金属は、ナトリウム、カリウム、リチウム、セシウムなど、また、アルカリ土類金属は、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウムなどである。中でも、ナトリウム、カリウム、セシウムの塩が好ましく用いられる。また、その有機酸の塩は、フッ素、塩素、臭素のようなハロゲンが置換されていてもよい。

上記各種の有機アルカリ金属塩やアルカリ土類金属塩の中では、例えば、有機スルホン酸の場合、下記一般式（I）



（式中、 $n$  は 1 ～ 10 の整数を示し、 $M$  はリチウム、ナトリウム、カリウム、セシウムなどのアルカリ金属、又はマグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウムなどのアルカリ土類金属を示し、 $m$  は  $M$  の原子価を示す。）

で表されるパーフルオロアルカンスルホン酸のアルカリ金属塩やアルカリ土類金属塩が好ましく用いられる。これらの化合物としては、例えば、特公昭 47-40445 号公報に記載されているものがこれに該当する。

上記一般式（I）において、パーフルオロアルカンスルホン酸としては、例えば、パーフルオロメタンスルホン酸、パーフルオロエタンスルホン酸、パーフルオロプロパンスルホン酸、パーフルオロブタンスルホン酸、パーフルオロメチルブタンスルホン酸、パーフルオロヘキサンスルホン酸、パーフルオロヘプタンスルホン酸、パーフルオロ

オクタンスルホン酸などを挙げることができる。特に、これらのカリウム塩が好ましく用いられる。その他、2, 5-ジクロロベンゼンスルホン酸；2, 4, 5-トリクロロベンゼンスルホン酸；ジフェニルスルホン-3-スルホン酸；ジフェニルスルホン-3, 3'-ジスルホン酸；ナフタレントリスルホン酸などの有機スルホン酸のアルカリ金属塩やアルカリ土類金属塩などを挙げることができる。

また、有機カルボン酸としては、例えば、パーフルオロギ酸、パーフルオロメタンカルボン酸、パーフルオロエタンカルボン酸、パーフルオロプロパンカルボン酸、パーフルオロブタンカルボン酸、パーフルオロメチルブタンカルボン酸、パーフルオロヘキサンカルボン酸、パーフルオロヘプタンカルボン酸、パーフルオロオクタンカルボン酸などを挙げることができ、これら有機カルボン酸のアルカリ金属塩やアルカリ土類金属塩が用いられる。アルカリ金属やアルカリ土類金属は前記と同じである。

上記の（C）成分は一種用いてもよく、二種以上を組み合わせ用いてもよい。また、その含有量は、（A）成分100重量部に対して、0.02～5重量部、好ましくは0.05～3重量部である。その含有量が少なすぎると、目標とする難燃性を達成するのが困難であり、多すぎると、量に見合った難燃性の向上効果が認められず、むしろ経済的に不利となる。

#### （D）ポリフルオロオレフィン樹脂

本発明の樹脂組成物においては、（D）成分として、ポリフルオロオレフィン樹脂が難燃性試験などにおける燃焼時の溶融滴下防止を目的に使用される。ここでポリフルオロオレフィン樹脂としては、通常フルオロエチレン構造を含む重合体、共重合体であり、たとえば、ジフルオロエチレン重合体、テトラフルオロエチレン重合体、テトラフル

オロエチレンーヘキサフルオロプロピレン共重合体、テトラフルオロエチレンとフッ素を含まないエチレン系モノマーとの共重合体である。好ましくは、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）であり、その平均分子量は、500,000以上であることが好ましく、特に好ましくは500,000～10,000,000である。本発明で用いることができるポリテトラフルオロエチレンとしては、現在知られているすべての種類のものを用いることができる。

なお、ポリテトラフルオロエチレンのうち、フィブリル形成能を有するものを用いると、さらに高い溶融滴下防止性を付与することができる。フィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレン（PTFE）には特に制限はないが、例えば、ASTM規格において、タイプ3に分類されるものが挙げられる。その具体例としては、例えばテフロン6-J（三井・デュポンフロケミカル社製）、ポリフロンD-1、ポリフロンF-103、ポリフロンF201（ダイキン工業社製）、CD076（旭アイシーアイフロロポリマーズ社製）等を挙げることができる。

また、上記タイプ3に分類されるもの以外では、例えばアルゴフロンF5（モンテフルオス社製）、ポリフロンMPA、ポリフロンFA-100（ダイキン工業社製）等を挙げることができる。これらのポリテトラフルオロエチレン（PTFE）は、単独で用いてもよいし、二種以上を組み合わせてもよい。上記のようなフィブリル形成能を有するポリテトラフルオロエチレン（PTFE）は、例えばテトラフルオロエチレンを水性溶媒中で、ナトリウム、カリウム、アンモニウムパーオキシジスルフィドの存在下で、1～100 p.s.i.の圧力下、温度0～200℃、好ましくは20～100℃で重合させることによって得られる。

ここで、(D)成分の含有量は、前記(A)成分100重量部に対して、0.02～3重量部、好ましくは、0.05～1重量部である。ここ量が少なすぎると、目的とする難燃性における溶融滴下防止性が十分でなく、多すぎると、これに見合った効果の向上はなく、耐衝撃性、成形品外観に悪影響を与える場合がある。したがって、それぞれの成形品に要求される難燃性の程度、たとえば、UL-94のV-0、V-1、V-2などにより他の含有成分の使用量などを考慮して適宜決定することができる。

#### (E) 官能基含有シリコン化合物

本発明の樹脂組成物は、前記四成分により目的を達成することができるが、さらに難燃性を向上させるために、(E)成分の官能基含有シリコン化合物を使用することができる。この官能基含有シリコン化合物としては官能基を有する(ポリ)オルガノシロキサン類であり、その骨格としては、式 $R^1aR^2bSiO_{(4-a-b)/2}$ 〔 $R^1$ は官能基含有基、 $R^2$ は炭素数1～12の炭化水素基、 $0 < a \leq 3$ 、 $0 \leq b < 3$ 、 $0 < a + b \leq 3$ 〕で表される基本構造を有する重合体、共重合体が好適に使用される。また、官能基としては、アルコキシ基、アリアルオキシ、ポリオキシアルキレン基、水素基、水酸基、カルボキシル基、シラノール基、アミノ基、メルカプト基、エポキシ基、ビニル基などを含有するものである。中でも、水素基、水酸基、アルコキシ基、エポキシ基、ビニル基が好ましい。

これら官能基としては、複数の官能基を有するシリコン化合物、異なる官能基を有するシリコン化合物を併用することもできる。この官能基を有するシリコン化合物は、その官能基( $R^1$ )／炭化水素基( $R^2$ )が、通常0.1～3、好ましくは0.3～2程度のものである。

これらシリコン化合物は液状物、ハウダーなどであるが、熔融混練において分散性の良好なものが好ましい。たとえば、室温での粘度が1,000～500,000 c s t程度の液状のものを例示できる。本発明のポリカーボネート樹脂組成物にあっては、シリコン化合物が液状であっても、組成物に均一に分散するとともに、成形時や成形品の表面にブリードすることが少ない特徴がある。

この官能基含有シリコン化合物は、(A)成分100重量部に対して、0.1～10重量部、好ましくは0.2～5重量部含有することができる。その量が少なすぎると、効果がでない場合があり、多すぎると、量に見合った効果がでない場合がある。

また、本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物には、必要により、無機充填剤を、成形品の剛性、さらには難燃性をさらに向上させるために含有させることができる。ここで、無機充填剤としては、タルク、マイカ、カオリン、珪藻土、炭酸カルシウム、硫酸カルシウム、硫酸バリウム、ガラス繊維、炭素繊維、チタン酸カリウム繊維などをあげることができる。なかでも、板状であるタルク、マイカなどや、繊維状の充填剤が好ましい。タルクとしては、マгнеシウムの含水ケイ酸塩であり、一般に市販されているものを用いることができる。また、タルクなどの無機充填剤の平均粒径は0.1～50  $\mu$ m、好ましくは、0.2～20  $\mu$ mである。これら無機充填剤、特にタルクを含有させることにより、剛性向上効果に加えて、シリコン化合物の配合量を減少させることができる場合がある。

ここで、無機充填剤の含有量は、(A)成分のポリカーボネート樹脂100重量部に対して、1～100重量部、好ましくは、2～50重量部である。その量が少なすぎると、目的とする剛性、難燃性改良効果が十分でない場合があり、多すぎると、耐衝撃性、熔融流動性が

低下する場合があります、成形品の厚み、樹脂流動長など、成形品の要求性状と成形性を考慮して適宜決定することができる。

本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、成形性、耐衝撃性、外観改善、耐候性改善、剛性改善等の目的で、上記（Ａ）、（Ｂ）、（Ｃ）及び（Ｄ）成分からなる必須成分に、（Ｅ）成分などの任意成分の一種以上とともに、ポリエステル樹脂などの熱可塑性樹脂、熱可塑性樹脂に常用されている添加剤成分を必要により含有することができる。例えば、フェノール系、リン系、イオウ系酸化防止剤、帯電防止剤、ポリアミドポリエーテルブロック共重合体（永久帯電防止性能付与）、ベンゾトリアゾール系やベンゾフェノン系の紫外線吸収剤、ヒンダードアミン系の光安定剤（耐候剤）、可塑剤、抗菌剤、相溶化剤、着色剤（染料、顔料）等が挙げられる。任意成分の配合量は、本発明の、難燃性ポリカーボネート樹脂組成物の特性が維持される範囲であれば特に制限はない。

次に、本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物の製造方法について説明する。本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、前記の各成分（Ａ）、（Ｂ）、（Ｃ）及び（Ｄ）成分を上記割合で、さらに必要に応じて用いられる、（Ｅ）などの各種任意成分を適当な割合で配合し、混練することにより得られる。このときの配合および混練は、通常用いられている機器、例えばリボンブレンダー、ドラムタンブラーなどで予備混合して、ヘンシェルミキサー、バンバリーミキサー、単軸スクリュウ押出機、二軸スクリュウ押出機、多軸スクリュウ押出機、コニーダ等を用いる方法で行うことができる。混練の際の加熱温度は、通常 240～300℃の範囲で適宜選択される。この熔融混練成形としては、押出成形機、特にベント式の押出成形機の使用が好ましい。なお、ポリカーボネート樹脂以外の含有成分は、あらかじめ

め、ポリカーボネート樹脂あるいは他の熱可塑性樹脂と熔融混練、すなわちマスターバッチとして添加することもできる。

本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、上記の熔融混練成形機、あるいは、得られたペレットを原料として、射出成形法、射出圧縮成形法、押出成形法、ブロー成形法、プレス成形法、真空成形法、発泡成形法などにより各種成形品を製造することができる。しかし、上記熔融混練方法により、ペレット状の成形原料を製造し、ついで、このペレットを用いて、射出成形、射出圧縮成形による射出成形品の製造に特に好適に用いることができる。なお、射出成形方法としては、外観のヒケ防止のため、あるいは軽量化のためのガス注入成形を採用することもできる。

本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、UL 94 / 5 V A (2.5 mm) 又はUL 94 / 5 V B (2.5 mm) の規格を満足しており、それから得られる成形品としては、複写機、ファックス、テレビ、ラジオ、テープレコーダー、ビデオデッキ、パソコン、プリンター、電話機、情報端末機、冷蔵庫、電子レンジなどの電気・電子機器のハウジングまたは部品、さらには、自動車部品など他の分野にも用いられる。

本発明について実施例および比較例を示してより具体的に説明するが、これらに、何ら制限されるものではない。

#### 実施例 1 ～ 4 及び比較例 1 ～ 8

第 1 表に示す割合で各成分を配合〔(A) 成分 100 重量部に対する重量部で示す。〕し、ベント式二軸押出成形機（機種名：TEM 35、東芝機械社製）に供給し、280℃で熔融混練し、ペレット化した。なお、すべての実施例および比較例において、酸化防止剤としてイルガノックス 1076（チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製）0.



2重量部およびアデカスタブC（旭電化工業社製）0.1重量部をそれぞれ配合した。得られたペレットを、120℃で12時間乾燥した後、成形温度270℃、金型温度80℃で射出成形して試験片を得た。得られた試験片を用いて性能を各種試験によって評価し、その結果を第1表に示した。

なお、用いた成形材料および性能評価方法を次に示す。

（A）ポリカーボネート樹脂

PC-1：ビスフェノールAポリカーボネート樹脂、タフロンA1700（出光石油化学社製）、MI=27g/10分（300℃、1.2kg荷重）、粘度平均分子量=17,500

PC-2：ビスフェノールAポリカーボネート樹脂、タフロンA2200（出光石油化学社製）、MI=12g/10分（300℃、1.2kg荷重）、粘度平均分子量=21,500

（B）コア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体

ゴム状弾性体-1：複合ゴム系グラフト共重合体、メタブレンS2001（三菱レイヨン社製）、ポリジメチルシロキサン含有量=50重量%以上

ゴム状弾性体-2：MBS系グラフト共重合体、メタブレンC223（三菱レイヨン社製）ポリブタジエン含有量=60重量%以上

ゴム状弾性体-3：SBS系グラフト共重合体（比較）、VECTOR 8550-5（Dexco Polymers社製）

（C）有機アルカリ金属塩等

金属-1：ジフェニルスルホン酸カリウム（UCB社製）

金属-2：パーフルオロブタンスルホン酸カリウム、メガファックF114（大日本インキ化学工業社製）

（D）ポリフルオロオレフィン樹脂

P T F E : C D 0 7 6 (旭アイシーアイフロポリマーズ社製:平均分子量は300万)

(E) シリコーン化合物

シリコーン-1:ビニル基メトキシ基含有メチルフェニルシリコーン、K R 2 1 9 (信越化学工業社製)、粘度 = 1 8 c s t

シリコーン-2:メトキシ基含有ジメチルシリコーン、K C - 8 9 (信越化学工業社製)、粘度 = 2 0 c s t

○難燃剤

・リン酸エステル:レゾルシノールビス(ジフェニルホスフェート)、P F R (旭電化工業社製)

・T B A オリゴマー:テトラブロモビスフェノール A オリゴマー、F G 7 5 0 0 (帝人化成社製)

[性能評価方法]

(1) 溶融流動性

M I (メルトインデックス) : J I S K 7 2 1 0 に準拠。3 0 0 °C、1 . 2 k g 荷重

(2) I Z O D (アイゾット衝撃強度)

A S T M D - 2 5 6 に準拠、2 3 °C (肉厚 1 / 8 インチ)、単位: k J / m<sup>2</sup>

(3) 熱歪み温度

J I S K 7 2 0 7 (A 法) に準拠。曲げ応力: 1 8 . 5 k g / c m<sup>2</sup>

(4) 滞留熱安定性

射出成形機東芝製 I S - 4 5 P により、成形温度を 3 0 0 °C に設定して、シリンダー内に 1 0 分間滞留後成形して厚さ 3 m m ( 8 0 m m × 4 0 m m × 3 m m ) の試験片を作製した。その作製した試験片を目視観察した。

### (5) 熱老化性

温度 80℃ の雰囲気 に 500 時間 保持 した 後、I Z O D 衝撃 強度 を 測定 した。

### (6) 耐湿熱性

温度 70℃、湿度 90% の雰囲気 に 500 時間 保持 した 後、I Z O D 衝撃 強度 を 測定 した。

### (7) リサイクル性

各組成物ペレットを用いて、成形温度 300℃、金型温度 80℃ の条件で射出成形によりノートパソコンハウジング (A4 タイプ) を成形した。この成形品を粉砕して、100% リサイクル原料として再度、同条件で試験片を成形した。

1. リサイクル成形試験片の I Z O D 衝撃強度を測定した。
2. リサイクル成形試験片の色調変化を測定した。J I S H 7 1 0 3 (黄変度試験方法) に準拠して、色差計でリサイクル前後の試験片の色相 (L, a, b) を測定し、色相変化を色差 ( $\Delta E$ ) として算出した。

### (8) 難燃性

U L 9 4 燃焼試験に準拠 (試験片厚み: 1.5 mm, 2.5 mm)

第1表-1

			実施例 1	比較例 1	比較例 2	比較例 3
割 合 割 合	(A)	PC-1	100	100	100	100
		PC-2	—	—	—	—
	(B)	ゴム状弾性体-1	3	3	—	0.1
		ゴム状弾性体-2	—	—	—	—
		ゴム状弾性体-3	—	—	—	—
	(C)	有機金属-1	0.3	—	0.3	0.3
		有機金属-2	—	—	—	—
	(D)	PTFE	0.3	0.3	0.3	0.3
	(E)	シリコーン-1	—	—	—	—
		シリコーン-2	—	—	—	—
		リン酸エステル	—	—	—	—
		TBAオリゴマー	—	—	—	—
①溶融流動性：MI〔g／10分〕			28	28	28	28
②IZOD衝撃強度〔kJ／m <sup>2</sup> 〕			65	65	8	8
③熱歪み温度（18.5kg／cm <sup>2</sup> ）			126	126	130	129
④滞留熱安定性（300℃、10分）			問題なし	—	—	—
⑤耐熱老化性（80℃、500H）			65	—	—	—
⑥耐湿熱性（70℃、湿度90%、500H）			60	—	—	—
⑦リサイクル性						
1. IZOD衝撃強度〔kJ／m <sup>2</sup> 〕			65	—	—	—
2. 色調変化：（ΔE）			1.2	—	—	—
⑧難燃性						
・ 1. 5mm			V-0	HB	V-0	V-2
・ 2. 5mm			V-0.5VB	V-2	V-0.5VB	V-2

第1表-2

			比較例 4	比較例 5	実施例 2	実施例 3
割 合 割 合	(A)	PC-1	100	100	100	—
		PC-2	—	—	—	100
	(B)	ゴム状弾性体-1	12	3	—	—
		ゴム状弾性体-2	—	—	5	5
		ゴム状弾性体-3	—	—	—	—
	(C)	有機金属-1	0.3	0.3	—	—
		有機金属-2	—	—	0.2	0.2
	(D)	PTFE	0.3	—	0.3	0.3
	(E)	シリコーン-1	—	—	1	1
		シリコーン-2	—	—	—	—
		リン酸エステル	—	—	—	—
		TBAオリゴマー	—	—	—	—
①溶融流動性：MI〔g／10分〕			35	28	32	14
②IZOD衝撃強度〔kJ／m <sup>2</sup> 〕			70	65	70	70
③熱歪み温度（18.5kg／cm <sup>2</sup> ）			117	126	125	127
④滞留熱安定性（300℃、10分）			シルバー黄変	—	問題なし	—
⑤耐熱老化性（80℃、500H）			—	—	65	—
⑥耐湿熱性（70℃、湿度90%、500H）			—	—	60	—
⑦リサイクル性						
1. IZOD衝撃強度〔kJ／m <sup>2</sup> 〕			—	—	70	—
2. 色調変化：（ΔE）			—	—	1.5	—
⑧難燃性						
・ 1. 5mm			V-1	V-2	V-0	V-0
・ 2. 5mm			V-1	V-2	V-0, 5VB	V-0, 5VB

第1表-3

			比較例 6	実施例 4	比較例 7	比較例 8
割 合 割 合	(A)	PC-1	100	100	100	100
		PC-2	—	—	—	—
	(B)	ゴム状弾性体-1	—	1	1	1
		ゴム状弾性体-2	—	—	—	—
		ゴム状弾性体-3	5	—	—	—
	(C)	有機金属-1	—	0.2	—	—
		有機金属-2	0.2	—	—	—
	(D)	PTFE	0.3	0.2	0.2	0.2
	(E)	シリコーン-1	1	—	—	—
		シリコーン-2	—	0.5	0.5	0.5
		リン酸エステル	—	—	5	—
		TBAオリゴマー	—	—	—	5
①溶融流動性：MI〔g／10分〕			30	27	42	30
②IZOD衝撃強度〔kJ／m <sup>2</sup> 〕			45	60	12	16
③熱歪み温度（18.5kg／cm <sup>2</sup> ）			123	128	102	128
④滞留熱安定性（300℃、10分）			シルバー	問題なし	問題なし	シルバー黄変
⑤耐熱老化性（80℃、500H）			30	55	5	8
⑥耐湿熱性（70℃、湿度90％、500H）			30	55	3	10
⑦リサイクル性						
1. IZOD衝撃強度〔kJ／m <sup>2</sup> 〕			40	60	10	8
2. 色調変化：（ΔE）			4.0	0.8	0.7	4.4
⑧難燃性						
・ 1. 5mm			V-2	V-0	V-0	V-0
・ 2. 5mm			V-2	V-0, 5VB	V-0, 5VB	V-0

第1表から下記のことが言える。

- ① (C) 成分がない比較例1においては、難燃性に劣る。
- ② (B) 成分がない、又は少なすぎる比較例2, 3においては、衝撃強度が低い。
- ③ (B) 成分が多すぎる比較例4においては、滞留熱安定性、難燃性に劣る。
- ④ (D) 成分がない比較例5においては、難燃性に劣る。
- ⑤ ゴム状弾性体の代わりにSBSを使用した比較例6においては、衝撃強度が低く、滞留熱安定性、耐熱老化性、耐湿熱性、リサイクル性及び難燃性にも劣る。
- ⑥ (C) 成分の代わりにリン酸エステルを使用した比較例7においては、衝撃強度が低く、熱歪み温度も低く、また耐熱老化性、耐湿熱性及びリサイクル性にも劣る。
- ⑦ (C) 成分の代わりにTBAオリゴマーを使用した比較例8においては、衝撃強度が低く、滞留熱安定性、耐熱老化性、耐湿熱性、リサイクル性及び難燃性にも劣る。

#### 産業上の利用可能性

本発明の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物は、ノンハロゲンで、かつ少量の添加剤の含有ですぐれた難燃特性が得られ、また成形性、耐衝撃性、熱安定性、耐湿熱性に優れる。また、リサイクル性にも優れ、再生使用が可能となり、環境問題、省資源に貢献できるものである。したがって、OA機器、情報機器、家庭電化機器などの電気・電子機器のハウジング又は部品、さらには自動車部品などその応用分野の拡大が期待される。

## 請 求 の 範 囲

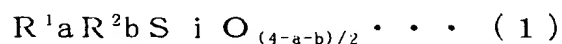
1. (A) ポリカーボネート樹脂 100 重量部に対して、(B) コア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体 0.2～10 重量部、(C) 有機アルカリ金属塩及び／又は有機アルカリ土類金属塩 0.02～5 重量部及び (D) ポリフルオロオレフィン樹脂 0.02～3 重量部を含有する難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

2. さらに、(E) 官能基含有シリコン化合物を (A) ポリカーボネート樹脂 100 重量部に対して、0.1～10 重量部含有する請求項 1 記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

3. (B) 成分のコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体は、アクリル系重合体がグラフトしたものである請求項 1 又は 2 に記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

4. (B) 成分のコア・シェルタイプグラフトゴム状弾性体中のゴム状重合体の含有率が 40 重量%以上である請求項 1～3 のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

5. (E) 成分の官能基含有シリコン化合物が、下記一般式 (1)



(式中、 $\text{R}^1$ は官能基含有基、 $\text{R}^2$ は炭素数 1～12 の炭化水素基、 $a$  及び  $b$  は、 $0 < a \leq 3$ 、 $0 \leq b < 3$ 、 $0 < a + b \leq 3$  の関係を満たす数を示す。)

で表される基本構造を有するオルガノポリシロキサンである請求項 2～4 のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

6. (D) 成分のポリフルオロオレフィン樹脂が、フィブリル形成能を有する平均分子量 500,000 以上のポリテトラフルオロエチレンである請求項 1～5 のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。



7. (A) 成分のポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量が、15,000～25,000である請求項1～6のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

8. 難燃性ポリカーボネート樹脂組成物が、UL94／5VA（2.5mm）又はUL94／5VB（2.5mm）の規格を満足しているものである請求項1～7のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物。

9. 請求項1～8のいずれかに記載の難燃性ポリカーボネート樹脂組成物を使用してなる電気・電子機器のハウジングまたは部品。



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/04144

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08L 69/00, C08K 5/42, C08J 5/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08L 69/00, C08K 3/00-13/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y1	JP, 10-306308, A (Mitsubishi Eng. Plast. K.K.), 17 November, 1998 (17.11.98), Claims; Columns 2, 9, 18 (Family: none)	1, 3, 4, 6-9 2, 5
Y2	EP, 902060, A2 (NEC CORPORATION Tokyo), 17 March, 1999 (17.03.99), Claims, Column 28; Example & JP, 10-139964, A	2, 5

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
05 September, 2000 (05.09.00)

Date of mailing of the international search report  
19 September, 2000 (19.09.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int. C1', C08L 69/00, C08K 5/42, C08J 5/00		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int. C1', C08L 69/00, C08K 3/00-13/08, C08J 5/00		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1926-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2000年 日本国実用新案登録公報 1996-2000年 日本国登録実用新案公報 1994-2000年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 10-306308, A (三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社) 17. 11月. 1998 (17. 11. 98) 特許	1, 3, 4, 6-9
Y1	請求の範囲, 第2欄, 第9欄, 第18欄 (ファミリーなし)	2, 5
Y2	EP, 902060, A2 (NEC CORPORATION Tokyo) 17. 3月. 1999 (17. 03. 99) Claims, 第28欄, Example & JP, 10-139964, A	2, 5
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 05. 09. 00	国際調査報告の発送日 19.09.00	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 油科 壮一 電話番号 03-3581-1101 内線 3493	



•  
•  
•

•  
•  
•  
•